

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representation of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY

As rescanning documents *will not* correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.

WEST**End of Result Set**

Generate Collection

Print

JP 1-~~101~~56719
or 64-56719

L19: Entry 1 of 1

File: DWPI

Mar 3, 1989

DERWENT-ACC-NO: 1989-110660

DERWENT-WEEK: 198915

COPYRIGHT 2003 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Resin compsns. for casting of electronic parts - including hardener obt'd. e.g. from methyl:tetra:hydro:phthalic anhydride and phenol-4-methyl:imidazole

PATENT-ASSIGNEE:

ASSIGNEE

CODE

SAN-YU RESIN KK

SANYN

PRIORITY-DATA: 1987JP-0212428 (August 26, 1987)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO

PUB-DATE

LANGUAGE

PAGES

MAIN-IPC

JP 01056719 A

March 3, 1989

007

APPLICATION-DATA:

PUB-NO

APPL-DATE

APPL-NO

DESCRIPTOR

JP 01056719A

August 26, 1987

1987JP-0212428

INT-CL (IPC): C08G 59/20; C08K 3/34; C08L 63/00

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 01056719A

BASIC-ABSTRACT:

The resin compsns comprise (A) epoxy cpds, (B) at least one reactive diluent selected from formulae (I) and (II). (C) silica fillers, (D) talc fillers and (E) hardeners and satisfy formula (III). R of formula (I) = H, an alkyl, alkenyl or aryl gp or R is of formula (A) or (B).

ADVANTAGE - The resin compsns have good casting property and provide curing prods having good electric insulation property and thermal impact resistance.

In an example, the main agent was prepd from 50 (ratio) of bisphenol A epoxy 50 of sec.-butylphenyl glycidyl ether, 167 of silica and 23 of talc. Hardener component was prepd from 74 of methyltetrahydrophthalic anhydride and 2 or 2-phenyl-4-methylimidazole. When the main agent and the hardener component were mixed, the resin compsn had a viscosity of below 20 cp. The main agent was left at 40 deg.C for one week. It had no deposit. Ten casting prods formed from the resin compsn were held at 40 deg.C for 2 hrs and then at 120 deg.C for 2 hrs. (one cycle) for 100 cycles. None of them had no crack (good thermal impact resistance). The casting prods had vol resistivities of 1 x 10 power (15) ohm-cm at 23 deg.C and 1 x 10 power (13) ohm-cm at 100 deg.C.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

TITLE-TERMS: RESIN COMPOSITION CAST ELECTRONIC PART HARDEN OBTAIN METHYL TETRA HYDRO

⑫ 公開特許公報(A)

昭64-56719

⑤ Int. Cl.

C 08 G 59/20

C 08 K 3/34

C 08 L 63/00

識別記号

NJW

CAM

CAM

NKX

庁内整理番号

7602-4J

⑬ 公開 昭和64年(1989)3月3日

7602-4J 審査請求 未請求 発明の数 1 (全7頁)

⑭ 発明の名称 電子部品注型用樹脂組成物

⑯ 特 願 昭62-212428

⑰ 出 願 昭62(1987)8月26日

⑱ 発 明 者 有 田 良 隆 大阪府高槻市道鶴町3丁目5番1号 サンユレジン株式会社内

⑲ 発 明 者 塚 本 真 治 大阪府高槻市道鶴町3丁目5番1号 サンユレジン株式会社内

⑳ 発 明 者 上 田 兼 司 大阪府高槻市道鶴町3丁目5番1号 サンユレジン株式会社内

㉑ 出 願 人 サンユレジン株式会社 大阪府高槻市道鶴町3丁目5番1号

㉒ 代 理 人 弁理士 三 枝 英 二 外2名

明 細 書

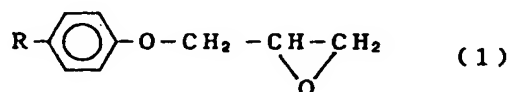
発明の名称 電子部品注型用樹脂組成物

特許請求の範囲

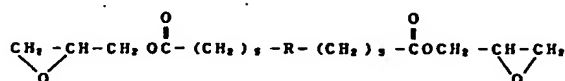
① 下記(A)乃至(E)の成分からなり、且つ
(F)で示される関係式を満足する電子部品注型
用樹脂組成物:

(A) エポキシ化合物

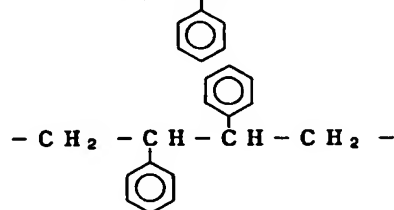
(B) 式(1)及び(2)で表される反応性希釈
剤の少なくとも一種



(Rは、水素、アルキル基、アルケニル基又はア
リール基をしめす)



(2)

(Rは、 $\text{CH}_2-\text{CH}-$ 又は

をしめす)

(C) シリカ系充填剤、

(D) タルク系充填剤、及び

(E) 硬化剤;

$$(F) \quad 0.2 < \frac{(B)}{(A) + (B)} < 0.8$$

$$0 < \frac{(C)}{(A) + (B)} < 2.5$$

$$0 < \frac{(D)}{(A) + (B)} < 1.0$$

発明の詳細な説明

産業上の利用分野

本発明は、電気絶縁性、耐熱衝撃性等に優れた

電子部品注型用エポキシ樹脂組成物に関する。

従来の技術とその問題点

エポキシ樹脂は、絶縁性、接着性、流動硬化性、耐熱性等に優れており、電子部品注型用材料として、広く使用されている。しかしながら、一般のエポキシ樹脂は、脆性的な材料であるため、例えば、アルミニウム電極、ハーメチックシール端子、セラミックコンデンサ、コイル等の各種の部品を埋め込んだ注型品においては、樹脂の硬化収縮、部品とエポキシ樹脂硬化物との熱膨張係数の差等に起因する応力により、クラック、剥離等が生じたり、部品が損傷したりする問題点がある。この様な問題点を低減するために、いわゆる可撓性硬化剤を使用したり、可撓性付与剤を配合する等の手段が行われてきたが、未だ十分に満足すべき結果は得られていない。これは、この様な材料の使用により、エポキシ樹脂硬化物の電気絶縁性の劣化、熱変形温度の著るしい低下等を生じて、エポ

キシ樹脂本来の優れた特性が著るしく損なわれるからである。

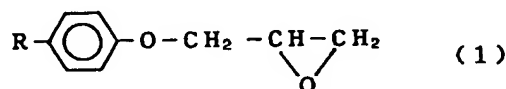
問題点を解決するための手段

本発明者は、上記の如き従来技術の問題点に鑑みて、種々研究を重ねた結果、エポキシ樹脂に特定の反応性希釈剤を配合する場合には、この様な問題点を大巾に軽減し得る新たな電子部品注型用エポキシ樹脂組成物が得られることを見出した。即ち、本発明は、下記に示すエポキシ樹脂組成物を提供するものである。

「下記(A)乃至(E)の成分からなり、且つ(F)で示される関係式を満足する電子部品注型用樹脂組成物：

(A) エポキシ化合物

(B) 式(1)及び(2)で表される反応性希釈剤の少なくとも一種



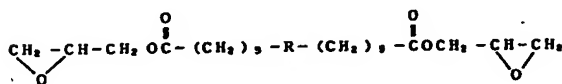
$$0 < \frac{(C)}{(A) + (B)} < 2.5$$

$$0 < \frac{(D)}{(A) + (B)} < 1.0$$

本発明において使用するエポキシ化合物(A)としては、特に限定されず、分子内に1個以上のエポキシ基を有する公知の全てのものを使用することができる。具体的には、フェノールノボラック型エポキシ、クレゾールノボラック型エポキシ、ビスフェノールA型エポキシ、ビスフェノールF型エポキシ、グリシジルエーテル型エポキシ、グリシジルエステル型エポキシ、グリシジリアミン型エポキシ、線状脂肪族エポキシ、脂環式エポキシ、複素環型エポキシ、ハロゲン化エポキシ等が挙げられ、これらの1種又は2種以上を使用する。

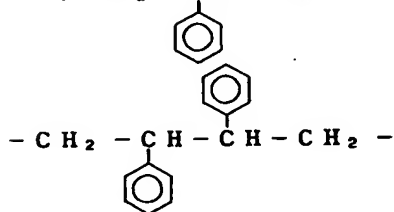
本発明で使用する反応性希釈剤(B)は、下記式(1)及び(2)で表されるものである。

(Rは、水素、アルキル基、アルケニル基又はアリール基をしめす)



(2)

(Rは、 $\text{CH}_2-\text{CH}(\text{C}_6\text{H}_5)-$ 又は



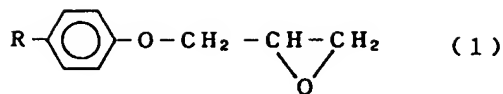
をしめす)

(C) シリカ系充填剤、

(D) タルク系充填剤、及び

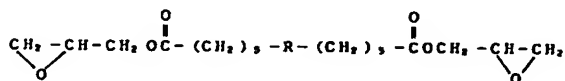
(E) 硬化剤；

$$(F) \quad 0.2 < \frac{(B)}{(A) + (B)} < 0.8$$



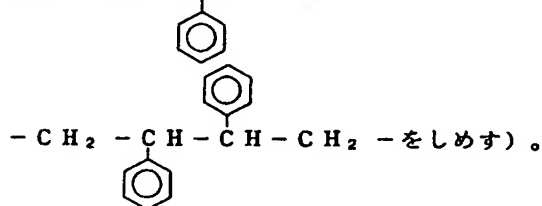
(Rは、水素、アルキル基、アルケニル基又はアリール基をしめす) :

式(1)で表される化合物としては、フェニルグリシジルエーテル、クレジルグリシジルエーテル、sec-ブチルフェニルグリシジルエーテル、カルダノールエポキシ化合物などが具体的に例示される。



(2)

(Rは、 $\text{CH}_2-\text{CH}(\text{O})-\text{CH}_2-$ 又は



タル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、無水コハク酸、ドデセニル無水コハク酸、無水マレイン酸、メチル無水ナジック酸、無水ピロメリット酸等の酸無水類：ポリメチレンジアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミン、アミノエチルエタノールアミン等の脂肪族ポリアミン：m-フェニレンジアミン、4,4'-ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルエーテル、ジアミノジフェニルスルホン等の芳香族アミン：ピペリジン、モルホリン、N-メチルピペラジン等の第2級アミン：トリエタノールアミン、2-ジメチルアミノ-2-ヒドロキシプロパン、ヘキサメチレンテトラミン、N,N'-ジメチルピペラジン、N-メチルモルホリン、ピリジン、2,4,6-トリス(ジメチルアミノ)メチル)フェニル等の第3級アミン：2-エチル-4-メチルイ

式(2)で表される化合物は、特公昭62-3136号公報に記載された一群の化合物の一部である。但し、該公報に記載された化合物であっても、Rが上記特定のものの以外である場合には、電子部品注型用樹脂組成物としての本願発明の目的とする効果は、達成されない。

本発明で使用するシリカ系充填剤(C)及びタルク系充填剤(D)は、ともに公知のものをそのまま使用することができる。シリカ系充填剤としては、平均粒径0.5~100μm程度のものが好ましく、5~50μm程度のものがより好ましい。タルク系充填剤としては、平均粒径0.8~50μm程度のものが好ましく、1~20μm程度のものがより好ましい。

本発明で使用する硬化剤(E)としては、公知のエポキシ樹脂用硬化剤の全てを使用することができる。この様な硬化剤としては、無水フタル酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、テトラヒドロ無水フ

ミダゾール、イミダゾール等のイミダゾール類等が挙げられる。これらの硬化剤は、成分(A)と成分(B)とを硬化させるに必要な最低量以上の量を使用すれば良い。

本発明組成物においては、更に上記成分(A)乃至(D)の間に

$$0.2 < \frac{(B)}{(A) + (B)} < 0.8$$

$$0 < \frac{(C)}{(A) + (B)} < 2.5$$

$$0 < \frac{(D)}{(A) + (B)} < 1.0$$

なる関係が成立する必要がある。成分(A)乃至成分(D)の間に上記の関係が成立しない場合には、本発明所望の効果は、達成されない。上記の関係は、

$$0.3 \leq \frac{(B)}{(A) + (B)} \leq 0.7$$

$$1. 0 \leq \frac{(C)}{(A) + (B)} \leq 2. 0$$

$$0. 1 \leq \frac{(D)}{(A) + (B)} \leq 0. 6$$

の範囲内にあることがより好ましい。

又、本発明においては、シリカ系充填剤 (C) 及びタルク系充填剤 (D) の併用を必須とするが、この両者の間には、

$$0. 05 \leq \frac{(D)}{(C) + (D)} \leq 0. 7$$

なる関係が成立することが好ましい。

尚、本発明組成物には、必要に応じて、ガラス繊維、アルミナ、水酸化アルミニウム、珪酸カルシウム、炭酸カルシウム、リン酸水素カルシウム、硫酸バリウム、マグネシア、珪酸ジルコニウム、クレー、マイカ、ポリエチレンパウダー、ポリアミドパウダー等の無機系及び有機系の充填剤：三酸化アンチモン、燐系、ハロゲン系等の難燃剤：

○…20以上40ポアズ未満

△…40以上60ポアズ未満

×…60ポアズ以上

II. 主剤の保存性

主剤混合物を40℃で1週間放置し、沈降の有無を調べた。

○…沈降なし

△…若干沈降あるが使用可能

×…沈降著しく使用不能

III. 耐熱衝撃性

オリファントワッシャ法により、クラックの発生を観察した。

<試験条件>

-40℃で2時間保持→120℃で2時間保持を1サイクルとして、100サイクルを行う。

試験個数を10個とし、正常個数/試験個数=M/Nとして表す。

IV. 体積固有抵抗

酸化チタン、カーボンブラック、ベンガラ、フタロシアニンブルー、群青等の顔料等の公知の充填剤を配合することができる。更に、接着性、耐湿性、脱泡性等の改善のために、シラン系カプリング剤、チタネート系カプリング剤等を併用しても良い。

発 明 の 効 果

本発明による電子部品注型用エポキシ樹脂組成物は、注型性に優れ、且つ硬化後の電気絶縁性及び耐熱衝撃性にも優れている。

実 施 例

以下に実施例及び比較例、並びに実験例を示し、本発明の特徴とするところをより一層明確にする。

尚、実施例及び比較例における各物性の測定方法及び判断基準は、下記の通りである。

I. 流動性

組成物の混合調製直後の粘度を調べた。

◎…20ポアズ未満

J I S K 6911により測定した。

実施例1～10及び比較例1～6

第1表に示す割合で各成分を使用して、エポキシ樹脂組成物を調製した。

第2表に各組成物の物性を示す。

本発明組成物の電子部品注型用樹脂としての優れた性質が明らかである。

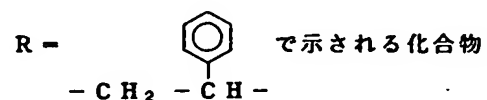
尚、第1表において、成分A～Nの詳細は、以下の通りである。

A…ビスフェノールA型エポキシ

B…sec-ブチルフェニルグリシジルエーテル

C…式(1)で示される化合物の混合物

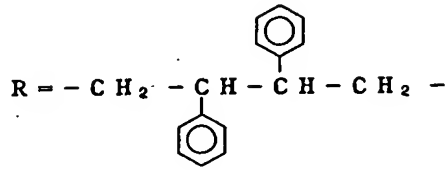
D…式(2)において



E…ブチルグリシジルエーテル

F...1, 6ヘキサンジオールジグリシジルエーテル

G...式(2)において



で示される化合物

H...シリカ

I...タルク

J...水酸化アルミニウム

K...炭酸カルシウム

L...無水メチルテトラヒドロフタル酸

M...ジアミノジフェニルメタン

N...2-フェニル-4-メチルイミダゾール

第 1 表

材料	実 施 例									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
A	85	70	50	30	50	50	50	50	50	50
B	15	30	50	70	50	50	50	-	-	50
C	-	-	-	-	-	-	-	50	-	-
D	-	-	-	-	-	-	-	-	50	-
E	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
F	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
G	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
H	167	167	167	167	95	143	175	167	167	167
I	23	23	23	23	95	47	15	23	23	23
J	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
K	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
L	78	76	74	72	76	76	76	74	62	-
M	-	-	-	-	-	-	-	-	-	24
N	2	2	2	2	2	2	2	2	2	-

主 剤

硬化剤

第 1 表 (続き)

	材料	比 較 例					
		1	2	3	4	5	6
主 剤	A	50	50	50	50	50	100
	B	50	50	-	-	-	-
	C	-	-	-	-	-	-
	D	-	-	-	-	-	-
	E	-	-	50	-	-	-
	F	-	-	-	50	-	-
	G	-	-	-	-	50	-
	H	-	-	167	167	167	167
	I	-	-	23	23	23	23
	J	190	-	-	-	-	-
硬化剤	K	-	190	-	-	-	-
	L	-	-	80	86	59	80
	M	-	-	-	-	-	-
	N	2	2	2	2	2	2

第 2 表

	実 施 例									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
流動性	△	○	◎	◎	△	○	◎	◎	◎	◎
保存性	○	○	○	○	○	○	△	○	○	○
耐熱衝撃性	8/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10
体積固有抵抗 (Ω-cm)	10 ¹⁵	10 ¹⁵	10 ¹⁵	10 ¹⁵	10 ¹⁵	10 ¹⁵	10 ¹⁵	10 ¹⁵	10 ¹⁵	10 ¹⁵
	10 ¹⁵	10 ¹⁴	10 ¹³	10 ¹²	10 ¹³	10 ¹³	10 ¹³	10 ¹³	10 ¹³	10 ¹³

第 2 表 (続き)

	比 較 例					
	1	2	3	4	5	6
流 動 性	○	×	○	○	○	×
保 存 性	×	○	○	○	○	○
耐 熱 衝 撃 性	5/10	7/10	0/10	0/10	0/10	0/10
体積固有抵抗 (Ω -cm)	23℃	10^{15}	10^{15}	10^{13}	10^{13}	10^{15}
	100℃	10^{13}	10^{13}	10^8	10^8	10^{15}

< 試験条件 >

- 40℃で2時間保持→120℃で2時間保持
を1サイクルとして、100サイクルを行う。

試験個数を10個とし、正常個数/試験個数 =
M/Nとして表す。

第3表に結果を示す。本発明組成物のイグニッ
ションコイル注型用樹脂としての優れた性質が明
らかである。

実験例 1

実施例1～10及び比較例1～6で得たエポキ
シ樹脂組成物を温度40℃、真空度3～5mmHg
の条件でイグニッションコイルに注入した後、硬
化させ、その特性を調べた。試験方法及び判断基
準は、以下の通りである。

I. 含浸性

イグニッションコイルを切断し、顕微鏡で含浸
の程度を調べる。

○…含浸0.98%以上、含浸性良好

×…含浸率0.98%未満、含浸性不良

II. ボイド

イグニッションコイルを切断し、顕微鏡で含浸
樹脂中のボイドの有無を調べる。

III. 耐熱衝撃性

イグニッションコイルを下記の熱サイクル試験
に供した後、外観（クラックの有無）及び二次コ
イルの断線の有無を調べる。

第 3 表

	実 施 例									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
含 浸 性	○	○	○	○	×	○	○	○	○	○
ボ イ ド	なし	なし	なし	なし	あり	なし	なし	なし	なし	なし
耐熱衝撃性	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10
	8/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10	10/10

第 3 表 (続き)

		比 較 例					
		1	2	3	4	5	6
含 浸 性		○	○	○	○	×	×
ボ イ ド		なし	なし	なし	なし	あり	あり
耐熱衝撃性	外観	7/10	8/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	断線	5/10	5/10	0/10	0/10	0/10	0/10